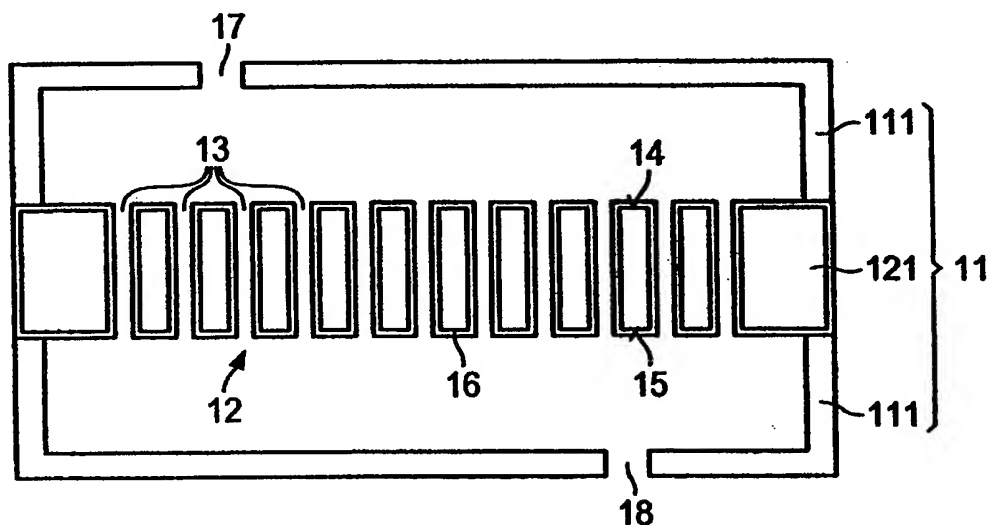



PCT
 WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
 Internationales Büro
 INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
 INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation ⁶ : B01J 19/00, 37/02	A1	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 99/61147 (43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 2. Dezember 1999 (02.12.99)
(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE99/01357 (22) Internationales Anmeldedatum: 5. Mai 1999 (05.05.99) (30) Prioritätsdaten: 198 23 036.2 22. Mai 1998 (22.05.98) DE (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; Wittelsbacherplatz 2, D-80333 München (DE). (72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): LEHMANN, Volker [DE/DE]; Geyerspergerstrasse 53, D-80689 München (DE). OTTOW, Stefan [DE/DE]; Putbuser Weg 10, D-01109 Dresden (DE). STENGL, Reinhard [DE/DE]; Bergstrasse 3, D-86391 Stadtbergen (DE). REISINGER, Hans [DE/DE]; Eibseestrasse 14, D-82031 Grünwald (DE). WENDT, Hermann [DE/DE]; Am Weichselgarten 49, D-85630 Grasbrunn (DE). (74) Gemeinsamer Vertreter: SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT; Postfach 22 16 34, D-80506 München (DE).		(81) Bestimmungsstaaten: JP, KR, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE). Veröffentlicht <i>Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.</i>

(54) Title: REACTOR SYSTEM AND CORRESPONDING PRODUCTION METHOD

(54) Bezeichnung: REAKTORANORDNUNG UND VERFAHREN ZU DEREN HERSTELLUNG



(57) Abstract

The invention relates to a reactor system comprising a housing (11) that is connected to a first silicon sheet (12). The silicon sheet (12) has pores (13) extending from a first main surface (14) of the silicon sheet (12) to the interior of the silicon sheet (12), preferably to a second main surface (15) of the silicon sheet (12). A catalyst layer (16) covers the surface of the pores at least in part.

(57) Zusammenfassung

Eine Reaktorordnung umfaßt ein Gehäuse (11), das mit einer Siliziumscheibe (12) verbunden ist. Die Siliziumscheibe (12) weist Poren (13) auf, die sich von einer ersten Hauptfläche (14) der Siliziumscheibe (12) in das Innere der Siliziumscheibe (12), vorzugsweise bis zu einer zweiten Hauptfläche (15) der Siliziumscheibe (12) erstrecken. Eine Katalysatorschicht (16) bedeckt die Oberfläche der Poren mindestens teilweise.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauretanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						

Beschreibung

Reaktoranordnung und Verfahren zu deren Herstellung.

- 5 Die Erfindung betrifft eine Reaktoranordnung zur Durchführung katalytischer, chemischer Reaktionen sowie ein Verfahren zu deren Herstellung.

Viele chemische Reaktionen, die in der chemischen Industrie
10 großtechnisch eingesetzt werden, sind katalytischer Natur. Zur Durchführung derartiger Prozesse werden zunehmend Reaktoranordnungen, die mikromechanisch hergestellt werden, eingesetzt. Für derartige Reaktoranordnungen hat sich der Name Mikroreaktor eingebürgert. Sie umfassen einen porösen Körper,
15 auf dessen Oberfläche der Katalysator vorliegt.

In G. Wießmeier et al, Micromech. Eng. 1996, Seiten 285 bis 289, ist ein Mikroreaktor vorgeschlagen worden, der mikromechanisch aufgebaut wird. Dazu wird auf einer Aluminiumplatte
20 ein Stapel aus mikrostrukturierten Aluminiumfolien gebildet, der durch anodische Oxidation in Al_2O_3 umgewandelt wird. Die Oberfläche der strukturierten Folien wird mit einem Katalysator versehen. Die Aluminiumplatte ist nicht porös. In dieser Anordnung ist die Katalysatortemperatur durch den Schmelzpunkt von Aluminium bei 500°C nach oben hin begrenzt. Die Reaktions-
25 aktionsteilnehmer gelangen durch Diffusion in die Poren.

Der Erfindung liegt daher das Problem zugrunde, eine Reaktoranordnung und ein Verfahren zu deren Herstellung anzugeben,
30 in der höhere Katalysatortemperaturen zulässig sind.

Dieses Problem wird erfindungsgemäß gelöst durch eine Reaktoranordnung gemäß Anspruch 1 sowie ein Verfahren zu deren Herstellung gemäß Anspruch 10. Weitere Ausgestaltungen der Erfindung gehen aus den übrigen Ansprüchen hervor.
35

Die Reaktoranordnung umfaßt ein Gehäuse, das mit einer Siliziumscheibe verbunden ist. Die Siliziumscheibe ist monolithisch mit Gehäuseteilen verbunden, so daß Teile der Siliziumscheibe Teile des Gehäuses bilden.

5

Die Siliziumscheibe weist Poren auf, die sich von einer Hauptfläche der Siliziumscheibe in das Innere der Siliziumscheibe erstrecken. Es ist eine Katalysatorschicht vorgesehen, die die Oberfläche der Poren mindestens teilweise be-
10 deckt. Als Katalysatorträger fungiert in der Reaktoranordnung die Siliziumscheibe. Aufgrund des Schmelzpunktes von Silizium von 1415°C sind daher in dieser Reaktoranordnung erheblich höhere Katalysatortemperaturen zulässig. In dem Gehäuse ist oberhalb der ersten Hauptfläche mindestens eine Zuführung
15 vorgesehen, über die Reaktionsteilnehmer den Poren zu- bzw. abführbar sind.

Die Poren weisen vorzugsweise einen Durchmesser im Bereich zwischen 1 µm und 10 µm auf. Die Tiefe der Poren beträgt 50
20 µm bis 500 µm.

Die Poren können sowohl durch anisotropes Trockenätzen als auch durch elektrochemisches Ätzen erzeugt werden.

25 Zur weiteren Vergrößerung der Oberfläche der Poren ist es vorteilhaft, die Seitenwände der Poren mit Seitenporen zu versehen, deren Durchmesser mindestens um einen Faktor 10 geringer als der Durchmesser der Poren ist. Eine derartig poröse Siliziumscheibe läßt sich vorteilhaft durch elektrochemi-
30 sches Ätzen herstellen.

Vorzugsweise verlaufen die Poren in der Siliziumscheibe von der ersten Hauptfläche zu einer gegenüberliegenden zweiten Hauptfläche der Siliziumscheibe. In diesem Fall können Reak-
35 tionsteilnehmer durch Druck oder Pumpen durch die Siliziumscheibe hindurch geleitet werden. Dadurch lassen sich definierte Reaktionszeiten einstellen.

Zur kontrollierten Reaktion zwischen zwei verschiedenen Reaktionsteilnehmern ist es vorteilhaft, in der Siliziumscheibe einen Reaktionsraum vorzusehen, von dem aus Poren zu der ersten Hauptfläche und zu der zweiten Hauptfläche verlaufen.
5 Ein derartiger mit Poren verbundener Reaktionsraum läßt sich durch elektrochemisches Ätzen durch Variation der Ätzparameter herstellen.

10 Weist die Siliziumscheibe von der ersten Hauptfläche zur zweiten Hauptfläche verlaufende Poren auf, so ist es vorteilhaft, in dem Gehäuse der zweiten Hauptfläche benachbart eine zweite Zuführung vorzusehen, über die Reaktionsteilnehmer zu- oder abgeführt werden können. Alternativ kann die zweite
15 Hauptfläche an ein Gefäß angeflanscht werden, aus dem bzw. in das die Reaktionsteilnehmer zu- bzw. abgefüllt werden.

Zur kontrollierten Durchführung von Reaktionen unterschiedlicher Reaktionsteilnehmer ist es vorteilhaft, in dem Gehäuse
20 der ersten Hauptfläche benachbart neben der ersten Zuführung eine dritte Zuführung vorzusehen.

Zur Durchführung von Reaktionen mit aggressiver Katalysatorschicht und/oder aggressiven Reaktionsprodukten und/oder Reaktionsteilnehmern, ist es vorteilhaft, auf der Oberfläche
25 der Poren zwischen der Oberfläche der Poren und der Katalysatorschicht eine inerte Schicht, insbesondere aus Siliziumnitrid, Siliziumoxid, Bornitrid oder Metallsilizid vorzusehen.

30 Als Katalysatorschicht ist unter anderem einer der Stoffe Platin, Palladium, Gold, Rhodium geeignet.

Die Reaktorordnung ist unter anderem zur Analyse von DNA geeignet. Weitere vorteilhafte Anwendungen der Reaktorordnung
35 sind alle katalytischen Reaktionen.

Vorzugsweise werden die Poren durch elektrochemisches Ätzen in einem fluoridhaltigen sauren Elektrolyten, gegen den die Siliziumscheibe als Anode verschaltet ist, erzeugt. Da die Siliziumscheibe bei der elektrochemischen Ätzung als Anode verschaltet ist, bewegen sich Minoritätsladungsträger im Silizium zu der mit dem Elektrolyten in Kontakt stehenden ersten Hauptfläche. An der ersten Hauptfläche bildet sich eine Raumladungszone aus. Da die Feldstärke im Bereich von Vertiefungen in der Oberfläche größer ist als außerhalb davon, bewegen sich die Minoritätsladungsträger bevorzugt zu diesen Punkten. Dadurch kommt es zu einer Strukturierung der Oberfläche. Je tiefer eine anfänglich kleine Unebenheit, die durch eine vorhergehende Ätzung gezielt in die erste Hauptfläche eingebracht werden kann, durch die Ätzung wird, desto mehr Minoritätsladungsträger bewegen sich wegen der vergrößerten Feldstärke dorthin und desto stärker ist der Ätzangriff an dieser Stelle.

Der Ätzangriff ist abhängig von der Stromdichte in der Siliziumscheibe und von der Fluoridkonzentration im Elektrolyten. Durch Erhöhung der Stromdichte im Elektrolyten oder durch Verminderung der Fluoridkonzentration im Elektrolyten wird der Porendurchmesser vergrößert. Auf diese Weise kann im Innern der Substratscheibe ein Reaktionsraum gebildet werden, dessen Durchmesser größer ist als derjenige der Poren im Bereich der ersten Hauptfläche. Insbesondere wird dadurch eine Verbindung zwischen den einzelnen Poren erzeugt. Ferner können durch Verringerung der Stromdichte und Erhöhung des Potentials am Ende einer elektrochemischen Ätzung in den Seitenwänden der Poren Seitenporen mit einem geringeren Durchmesser als dem der Poren gebildet werden. Da der Durchmesser von Poren von der Dotierung abhängt, lassen sich feine Seitenporen auch durch Erhöhung der n-Dotierung (zum Beispiel durch Ausdiffusion aus PSG) und einen zweiten elektrochemischen Ätzvorgang erzeugen.

Im folgenden wird die Erfindung anhand von Ausführungsbeispielen, die in den Figuren dargestellt sind, näher erläutert.

5 Figur 1 zeigt einen Schnitt durch eine Reaktorordnung mit einer Siliziumscheibe mit durchgehenden Poren.

10 Figur 2 zeigt einen Schnitt durch eine Siliziumscheibe mit Poren, die von einer ersten Hauptfläche in die Siliziumscheibe hineinreichen.

15 Figur 3 zeigt einen Schnitt durch eine Siliziumscheibe mit Poren, die im Bereich der Seitenwände Seitenporen aufweisen.

20 Figur 3a zeigt ein Detail aus der Seitenwand der Poren der in Figur 3 dargestellten Siliziumscheibe.

25 Figur 4 zeigt einen Schnitt durch eine Siliziumscheibe mit durchgehenden Poren.

30 Figur 5 zeigt einen Schnitt einer Reaktorordnung mit einer Siliziumscheibe, die einen Reaktionsraum, der über Poren mit einer ersten Hauptfläche und einer zweiten Hauptfläche verbunden ist, umfaßt.

35 Eine Reaktorordnung umfaßt ein Gehäuse 11, in dem eine Siliziumscheibe 12 angeordnet ist. Die Siliziumscheibe 12 weist im mittleren Bereich Poren 13 auf, die von einer ersten Hauptfläche 14 zu einer zweiten Hauptfläche 15 verlaufen (siehe Figur 1). Außerhalb des mittleren Bereichs weist die Siliziumscheibe 12 einen massiven Randbereich 121 auf. Die Oberfläche der Siliziumscheibe 12 ist mit einer Katalysatorschicht 16 aus Au, Pd, Pt, Rh mit einer Schichtdicke von 10 nm versehen.

Das Gehäuse 11 umfaßt zwei Gehäuseteile 111 aus zum Beispiel Glas, Si, SiO₂, Al₂O₃ oder ähnlichem, die an den Randbereich 121 angrenzen und mit dem Randbereich 121 dicht abschließen. Die beiden Gehäuseteile 111 und der Randbereich 121 bilden
5 gemeinsam das Gehäuse 11.

Die Poren 13 weisen einen Durchmesser von 1 bis 10 µm auf. Die Dicke der Siliziumscheibe 12 parallel zum Verlauf der Poren 13 beträgt 500 µm.

10

Das Gehäuse 11 weist auf der der ersten Hauptfläche 14 benachbarten Seite in einem der Gehäuseteile 111 eine erste Zuführung 17 und auf der der zweiten Hauptfläche 15 benachbarten Seite in dem anderen Gehäuseteil 111 eine zweite Zuführung 18 auf.
15

Die Siliziumscheibe 12 ist so in dem Gehäuse 11 angeordnet, daß sie mit der Wand der Gehäuseteile 111 dicht abschließt. Reaktionsteilnehmer, die über die erste Zuführung 17 in den
20 Raum, der der ersten Hauptfläche 14 benachbart ist, gelangen, können nur über die Poren 13 zu der zweiten Zuführung 18 gelangen. Im Betrieb werden die Reaktionsteilnehmer mit einem Druck von 0 bis 10 bar durch die erste Zuführung 17 gepumpt.

25 Zur Herstellung der Siliziumscheibe 12 wird die Siliziumscheibe aus n-dotiertem monokristallinem Silizium mit der ersten Hauptfläche mit einem fluoridhaltigen sauren Elektrolyten mit einer Flußsäurekonzentration von 3 Gewichtsprozent in Kontakt gebracht. Die Siliziumscheibe 12 wird als Anode ver-
30 schaltet. Dazu wird zwischen die Siliziumscheibe 12 und den Elektrolyten eine Spannung von 3 Volt angelegt. Von der zweiten Hauptfläche 15 her wird die Siliziumscheibe 12 mit Licht beleuchtet, so daß sich eine Stromdichte von 10 mA/cm² einstellt. Ausgehend von Vertiefungen, die in der ersten
35 Hauptfläche 14 durch eine maskierte, alkalische Ätzung gebildet werden, werden bei der elektrochemischen Ätzung die Poren 13 erzeugt. Nach etwa 10 Stunden Ätzzeit erreicht die Ätzung

die zweite Hauptfläche 15, so daß die Poren durchgehend von der ersten Hauptfläche 14 zur zweiten Hauptfläche 15 verlaufen.

- 5 Die Katalysatorschicht 16 aus Au, Pd, Pt oder Rh wird durch CVD-Abscheidung aufgebracht.

In einem weiteren Ausführungsbeispiel weist eine Siliziumscheibe 21 Poren 22 auf, die ausgehend von einer ersten
10 Hauptfläche 23 sich in die Tiefe der Siliziumscheibe 21 hinein erstrecken (siehe Figur 2). Die Poren 22 weisen einen Durchmesser von 10 µm und eine Tiefe von 500 µm auf.

Die Poren 22 werden analog wie anhand von Figur 1 erläutert
15 durch elektrochemisches Ätzen erzeugt. Bis auf die Ätzzeit werden dieselben Ätzparameter wie in dem anhand von Figur 1 geschilderten Beispiel verwendet. Die Ätzzeit wird jedoch nach 8 Stunden beendet, so daß die Poren 22 in der Siliziumscheibe 21 enden.

20 Auf die Oberfläche der Poren 22 wird eine inerte Schicht 24 aus Siliziumnitrid in einer Dicke von 100 nm aufgebracht. Die inerte Schicht 24 wird in einem CVD-Verfahren abgeschieden. Auf die inerte Schicht 24 wird eine Katalysatorschicht 25 aus
25 Platin oder Palladium in einer Dicke von 10 nm durch CVD-Abscheidung oder Aufdampfung aufgebracht.

In einem weiteren Ausführungsbeispiel weist eine Siliziumscheibe 31 Poren 32 auf, die von einer ersten Hauptfläche 32
30 in die Siliziumscheibe 31 hineinreichen (siehe Figur 3). Die Seitenwände der Poren 32 weisen Seitenporen 34 auf, deren Durchmesser erheblich kleiner als der Durchmesser der Poren 32 ist (siehe Figur 3a, in der der in Figur 3 mit 3a bezeichnete Ausschnitt vergrößert dargestellt ist).

35 Zur Herstellung der Siliziumscheibe 31 wird die erste Hauptfläche 33 mit einem flußsäurehaltigen, sauren Elektroly-

ten mit einer Flußsäurekonzentration von 6 Gewichtsprozent in Kontakt gebracht. Die Siliziumscheibe 31 wird als Anode verschaltet und mit einem Potential von 2 Volt beaufschlagt. Die Siliziumscheibe 31 wird von der Rückseite her beleuchtet, so daß eine Stromdichte von 15 mA/cm^2 eingestellt wird. Ausgehend von Vertiefungen in der ersten Hauptfläche 33, die zuvor durch alkalische Ätzung unter Verwendung einer photolithographisch erzeugten Maske gebildet werden, schreitet die Ätzung in die Siliziumscheibe 31 hinein fort, wobei die Poren 32 gebildet werden. Nach einer Ätzzeit von 8 Stunden beträgt der Durchmesser der Poren 32 $10 \mu\text{m}$ und die Tiefe $400 \mu\text{m}$.

Anschließend wird das Potential, mit dem die Siliziumscheibe 31 verbunden ist, auf 10 Volt erhöht und die Beleuchtung ausgeschaltet. Die übrigen Parameter bleiben unverändert. Bei dieser erhöhten Spannung wird die elektrochemische Ätzung fortgesetzt. Es bilden sich in den Seitenwänden der Poren 32 Seitenporen 34, die einen Durchmesser von 100 nm aufweisen. Die Ätzung wird 3 Minuten fortgesetzt, so daß die Tiefe der Seitenporen 34 gemessen von der Seitenwand der Poren 32 $5 \mu\text{m}$ beträgt.

Anschließend wird eine Katalysatorschicht 35 aus Au, Pt, Pd oder Rh durch CVD-Abscheidung aufgebracht. Die Katalysatorschicht 35 weist eine Dicke von 10 nm auf. Sie bedeckt die Oberfläche der Poren 32 und der Seitenporen 34 mit im wesentlichen konformer Kantenbedeckung.

In einem weiteren Ausführungsbeispiel weist eine Siliziumscheibe 41 von einer ersten Hauptfläche 42 zu einer zweiten Hauptfläche 43 verlaufende Poren 44 auf. Die Seitenwände der Poren 44 und die erste Hauptfläche 42 sind mit einer Katalysatorschicht 45 bedeckt. Die Katalysatorschicht 45 weist eine Dicke von 10 nm auf und enthält Au, Pt, Pd oder Rh. Die zweite Hauptfläche 43 der Siliziumscheibe 41 liegt dagegen frei (siehe Figur 4).

Die Herstellung der Siliziumscheibe 41 erfolgt analog wie in Zusammenhang mit Figur 2 erläutert. Zunächst werden die Poren 44 erzeugt, die von der ersten Hauptfläche 42 in die Tiefe der Siliziumscheibe 41 hineinreichen. Anschließend wird die Katalysatorschicht 45 aus Au, Pt, Pd oder Rh durch CVD-Abscheidung oder Bedampfen gebildet. Anschließend wird die Siliziumscheibe 41 durch Schleifen oder Ätzen von der zweiten Hauptfläche 43 her zurückgedünnt, so daß die in Figur 4 dargestellte siebartige Struktur entsteht.

10

Ein Gehäuse 51 umfaßt ein erstes Gehäuseteil 511 und ein zweites Gehäuseteil 512, die jeweils dicht mit einer Siliziumscheibe 52 verbunden sind (siehe Figur 5). Dabei grenzt das erste Gehäuseteil 511 an eine erste Hauptfläche der Siliziumscheibe 52 und das zweite Gehäuseteil 512 an eine zweite Hauptfläche der Siliziumscheibe 52 an. Das erste Gehäuseteil 511 und das zweite Gehäuseteil 512 besteht zum Beispiel aus Si.

20 Die Siliziumscheibe 52 weist Poren 55 auf, die von der ersten Hauptfläche 53 bzw. der zweiten Hauptfläche 54 bis zu einem Reaktionsraum 56 im Inneren der Siliziumscheibe 52 reichen.

Entlang der ersten Hauptfläche 52 sind die Poren in parallel angeordneten Zeilen angeordnet. Jede zweite Zeile der Poren 55 ist über eine Rohrleitung 57 mit einer ersten Zuführung 58 verbunden. Die dazwischen angeordneten Zeilen der Poren 55 enden in einem Hohlraum, der durch das Gehäuseteil 511 oberhalb der ersten Hauptfläche 53 aufgespannt wird. Im Bereich der zweiten Hauptfläche 54 münden die Poren 55 alle in einen Hohlraum, der durch das zweite Gehäuseteil 512 der zweiten Hauptfläche 54 benachbart aufgespannt wird.

Das zweite Gehäuseteil 512 ist mit einer zweiten Zuführung 59 und das erste Gehäuseteil 511 mit einer dritten Zuführung 510 versehen.

Alternativ werden das erste Gehäuseteil 511 und das zweite Gehäuseteil 512 aus Silizium gebildet. Dabei werden in den Gehäuseteilen 511, 512 jeweils Rinnen vorgesehen, die einerseits mit der ersten Zuführung 58, der zweiten Zuführung 59 bzw. der dritten Zuführung 510 verbunden sind und die andererseits an die Poren 55, die mit der betreffenden Zuführung 58, 59, 510 verbunden sind, angrenzen. Vorzugsweise werden die Rinnen in dem ersten Gehäuseteil 511 kammartig ausgestaltet, wobei die mit der ersten Zuführung 58 verbundenen Rinnen in die mit der zweiten Zuführung 59 verbundenen Rinnen hineingreifen.

Im Betrieb der Reaktoranordnung wird über die erste Zuführung 58 eine erste Art Reaktionsteilnehmer und über die dritte Zuführung 510 eine zweite Art Reaktionsteilnehmer zugeführt. Diese gelangen über die Poren 55 in den Reaktionsraum 56, in dem sie reagieren. Reaktionsprodukte gelangen durch die Poren 55 vom Reaktionsraum 56 zur zweiten Hauptfläche 54 und von dort zur zweiten Zuführung 59.

Die Oberfläche der Poren 55 und des Reaktionsraum 56 ist mit einer Katalysatorschicht aus Au, Pt, Pd oder Rh in einer Schichtdicke von 10 nm versehen (nicht dargestellt).

Zur Herstellung der Siliziumscheibe 52 wird zunächst die erste Hauptfläche durch eine alkalische Ätzung mit Hilfe einer photolithographisch erzeugten Maske mit zeilenförmig angeordneten Vertiefungen versehen. Dann wird die erste Hauptfläche 53 mit einem flußsäurehaltigen sauren Elektrolyten mit einer Flußsäurekonzentration von 3 Gewichtsprozent in Kontakt gebracht. Die Siliziumscheibe 52 wird als Anode verschaltet und mit einem Potential von 3 Volt beaufschlagt. Von der zweiten Hauptfläche 54 her wird die Siliziumscheibe 52 beleuchtet, so daß eine Stromdichte von 10 mA/cm^2 eingestellt wird. Ausgehend von den zeilenförmig angeordneten Vertiefungen werden dabei die Poren 55 bis in eine erste Tiefe von $200 \text{ }\mu\text{m}$ erzeugt. Die erste Tiefe wird nach einer Ätzzeit von 4 Stunden

erreicht. Dann wird die Stromdichte durch Reduktion des Potentials an der Siliziumscheibe 52 auf 2 Volt und Beleuchtung von der zweiten Hauptfläche 54 her auf 30 mA/cm² erhöht. Die elektrochemische Ätzung wird fortgesetzt, wobei bedingt durch
5 die geänderten Parameter der Querschnitt der Poren 55 wächst, bis benachbarte Poren 55 zusammenwachsen und den höhlenförmigen Reaktionsraum 56 bilden. Nach Erreichen einer zweiten Tiefe von 300 µm, entsprechend einer Abmessung parallel zum Verlauf der Poren 55 von 100 µm für den Reaktionsraum 56 wer-
10 den die Ätzparameter auf 10 mA/cm² für weitere 4 Stunden geändert. Die elektrochemische Ätzung wird mit diesen Parametern fortgesetzt, wobei die Poren 55 zwischen dem Reaktionsraum 56 und der zweiten Hauptfläche 54 gebildet werden. Nach
15 Erreichen der zweiten Hauptfläche 54 wird die elektrochemische Ätzung beendet.

Patentansprüche

1. Reaktoranordnung,

- 5 - bei der ein Gehäuse (11) und eine Siliziumscheibe (12) vorgesehen sind,
- bei der die Siliziumscheibe (12) monolithisch mit Teilen des Gehäuses (11) verbunden ist,
- 10 - bei der die Siliziumscheibe (12) Poren (13) aufweist, die sich von einer ersten Hauptfläche (14) der Siliziumscheibe (12) in das Innere der Siliziumscheibe (12) erstrecken,
- 15 - bei der eine Katalysatorschicht (16) vorgesehen ist, die die Oberfläche der Poren (13) mindestens teilweise bedeckt,
- bei der das Gehäuse (11) mit einer ersten Zuführung (17) versehen ist.

20

2. Reaktoranordnung nach Anspruch 1,

bei der der Durchmesser der Poren (13) 1 µm bis 10 µm beträgt.

25 3. Reaktoranordnung nach Anspruch 1 oder 2,

bei der die Seitenwände der Poren (32) mit Seitenporen (34) versehen sind, wobei der Durchmesser der Seitenporen (34) mindestens um einen Faktor 10 geringer als der der Poren (32) ist.

30

4. Reaktoranordnung nach einem der Ansprüche 1 bis 3,

- bei der die Poren (13) von der ersten Hauptfläche (14) zu einer zweiten Hauptfläche (15) der Siliziumscheibe (12) verlaufen,
- 35

- bei der das Gehäuse (11) eine zweite Zuführung aufweist, die der zweiten Hauptfläche benachbart ist.

5. Reaktorordnung nach Anspruch 4,
5 bei der in der Siliziumscheibe (52) ein Reaktionsraum (56) vorgesehen ist, von dem aus Poren (55) zu der ersten Hauptfläche (53) und der zweiten Hauptfläche (54) verlaufen.

6. Reaktorordnung nach Anspruch 5,
10 bei der das Gehäuse (51) eine dritte Zuführung (510) aufweist, die der ersten Hauptfläche (53) benachbart ist und über die unabhängig von der ersten Zuführung (58) Reaktionsteilnehmer zuführbar sind.

15 7. Reaktorordnung nach einem der Ansprüche 1 bis 6, bei der zwischen der Oberfläche der Poren (22) und der Katalysatorschicht (25) eine inerte Schicht (24) vorgesehen ist.

8. Reaktorordnung nach Anspruch 7,
20 bei der die inerte Schicht (24) mindestens eines der Materialien Siliziumnitrid, Siliziumoxid, Bornitrid, Metallsilizid enthält.

9. Reaktorordnung nach einem der Ansprüche 1 bis 8,
25 bei der die Katalysatorschicht (16) mindestens einen der Stoffe Platin, Palladium, Gold, Protinium enthält.

10. Verfahren zur Herstellung einer Reaktorordnung nach einem der Ansprüche 1 bis 9,
30 bei dem die Poren (13) in der Siliziumscheibe (12) durch elektrochemisches Ätzen in einem sauren, fluoridhaltigen Elektrolyten, gegen den die Siliziumscheibe (12) als Anode verschaltet ist, gebildet werden.

35 11. Verfahren nach Anspruch 10,

14

- bei dem bei der elektrochemischen Ätzung eine konstante Stromdichte eingestellt wird, bis die Poren (55) eine erste Tiefe erreicht haben,
- 5 - bei dem die Stromdichte nach Erreichen der ersten Tiefe erhöht wird, so daß der Durchmesser der Poren (55) zunimmt und benachbarte Poren (55) zur Bildung eines Reaktionsraumes (56) zusammenwachsen,
- 10 - bei dem nach Erreichen einer zweiten Tiefe die Stromdichte reduziert wird, so daß getrennte Poren (55) von der zweiten Tiefe bis zur zweiten Hauptfläche (54) wachsen.
- 12. Verfahren nach Anspruch 10 oder 11,
- 15 bei dem nach Bildung der Poren (32) die Parameter der elektrochemischen Ätzung so geändert werden, daß in den Seitenwänden der Poren (32) Seitenporen (34) mit einem Durchmesser, der mindestens um einen Faktor 10 geringer als der der Poren (32) ist, gebildet werden.

20

1/3

FIG 1

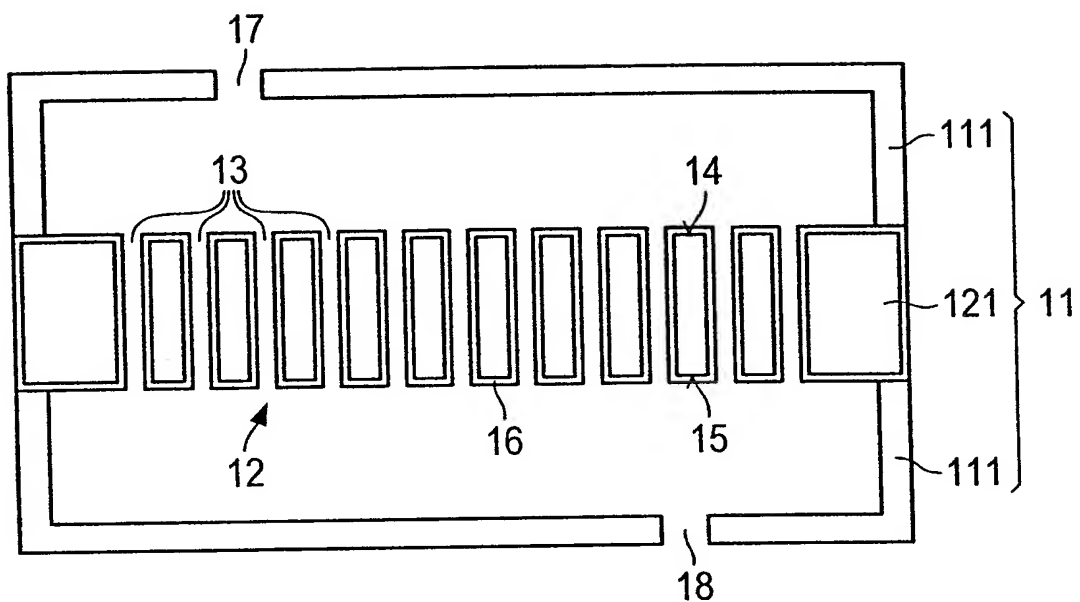
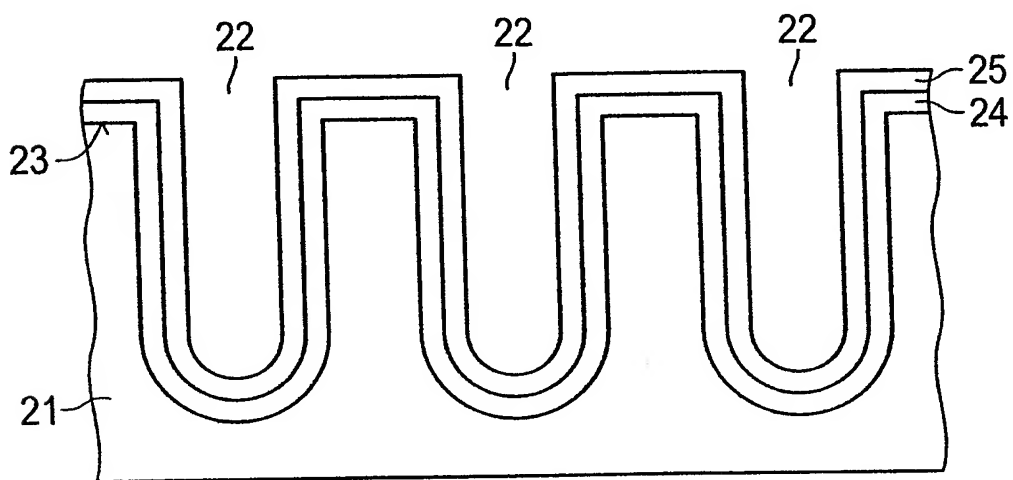


FIG 2



2/3

FIG 3

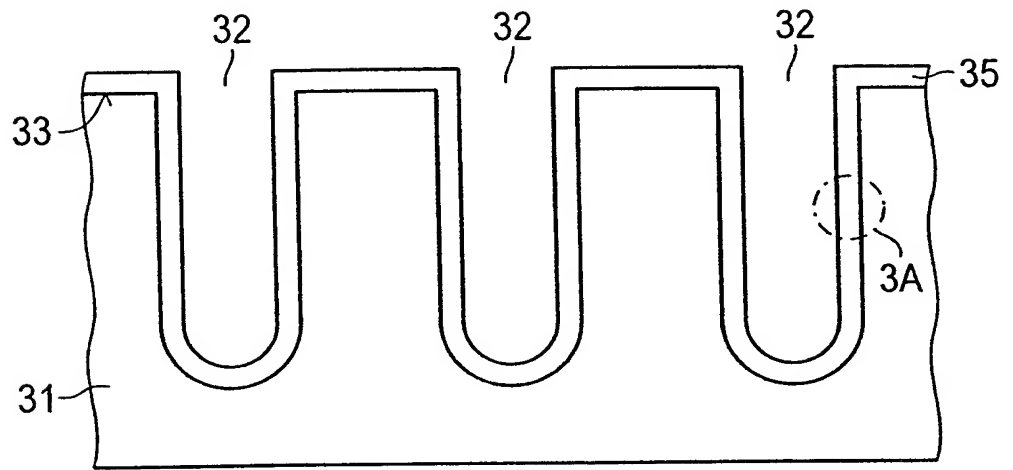


FIG 3A

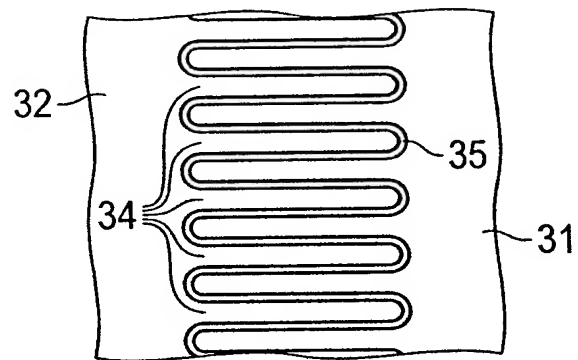
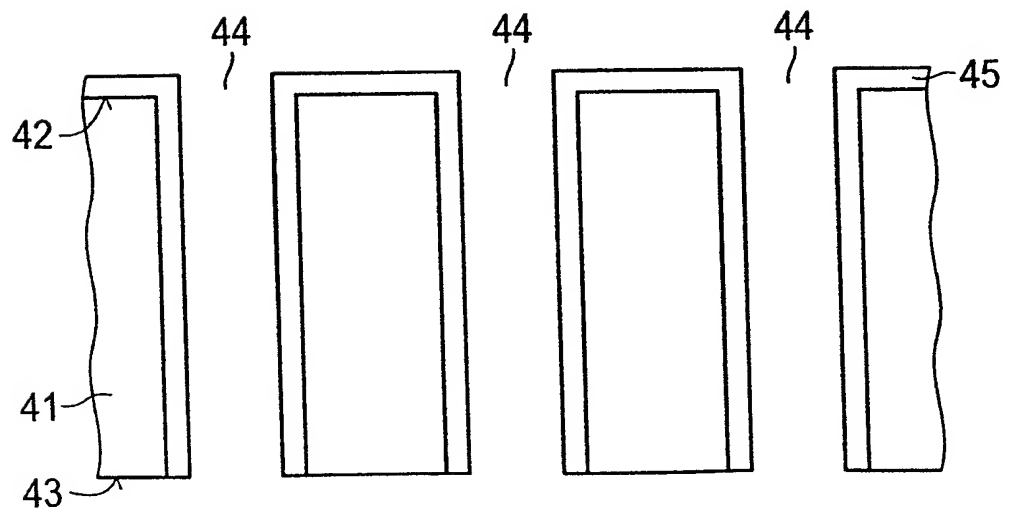
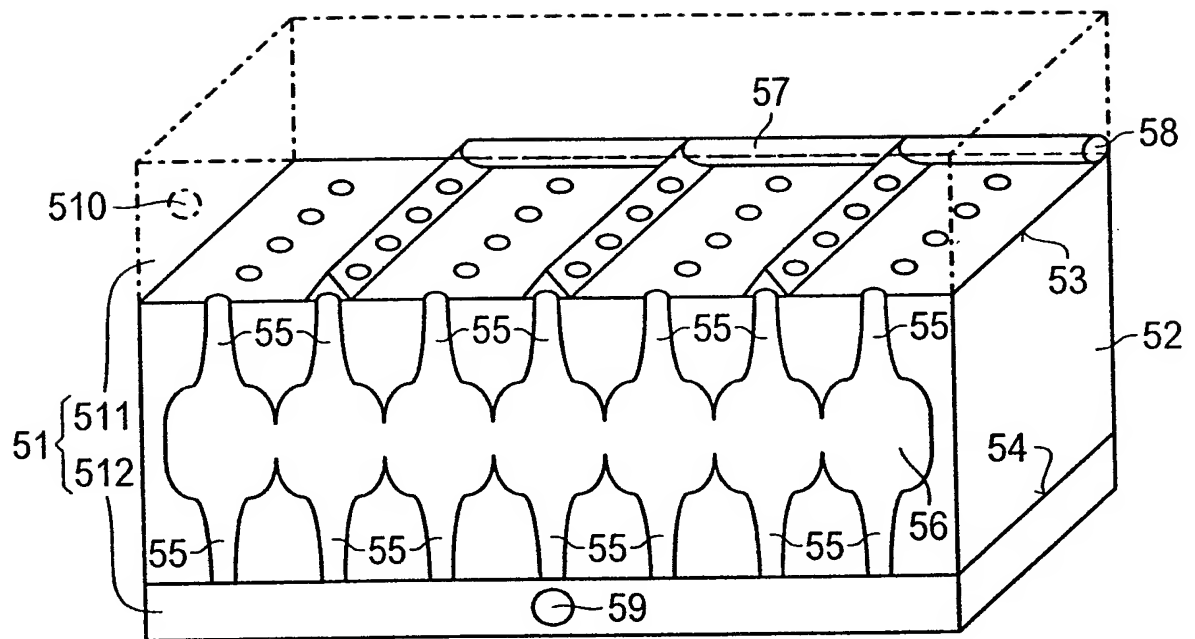


FIG 4



3/3

FIG 5



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/DE 99/01357

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 6 B01J19/00 B01J37/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
IPC 6 B01J

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 96 30934 A (PHARMACIA BIOTECH AB ;LAURELL THOMAS (SE); DROTT JOHAN (SE); ROSEN) 3 October 1996 (1996-10-03)	1, 10, 11
Y	page 4, line 20 -page 9, line 24 page 10, line 32 -page 11, line 15 claims 1-8,13	2, 3
Y	EP 0 281 364 A (ALCAN INT LTD) 7 September 1988 (1988-09-07) the whole document	2, 3
A	DE 39 15 920 A (MESSERSCHMITT BOELKOW BLOHM) 22 November 1990 (1990-11-22) column 2, line 22 -column 4, line 2 column 9, line 30 - line 57 claims 1-8; figures 4,6,15	1, 3-5, 7, 10
	-/--	

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier document but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

15 October 1999

Date of mailing of the international search report

26/10/1999

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Vlassis, M

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/DE 99/01357

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	<p>CHOPEY N P, ONDREY G, PARKINSON G: "Microreactors find new niches" CHEMICAL ENGINEERING, March 1997 (1997-03), pages 30-33, XP000197691 page 33</p> <p style="text-align: center;">-----</p>	1,2,9

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

information on patent family members

International Application No

PCT/DE 99/01357

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 9630934 A	03-10-1996	SE 510760 C EP 0870320 A JP 11503227 T SE 9501116 A	21-06-1999 14-10-1998 23-03-1999 30-09-1996
EP 0281364 A	07-09-1988	JP 63232855 A	28-09-1988
DE 3915920 A	22-11-1990	NONE	

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 99/01357

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
 IPK 6 B01J19/00 B01J37/02

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
 IPK 6 B01J

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 96 30934 A (PHARMACIA BIOTECH AB ;LAURELL THOMAS (SE); DROTT JOHAN (SE); ROSEN) 3. Oktober 1996 (1996-10-03)	1, 10, 11
Y	Seite 4, Zeile 20 -Seite 9, Zeile 24 Seite 10, Zeile 32 -Seite 11, Zeile 15 Ansprüche 1-8, 13	2, 3
Y	EP 0 281 364 A (ALCAN INT LTD) 7. September 1988 (1988-09-07) das ganze Dokument	2, 3
A	DE 39 15 920 A (MESSERSCHMITT BOELKOW BLOHM) 22. November 1990 (1990-11-22) Spalte 2, Zeile 22 -Spalte 4, Zeile 2 Spalte 9, Zeile 30 - Zeile 57 Ansprüche 1-8; Abbildungen 4, 6, 15	1, 3-5, 7, 10
	-/-	

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

15. Oktober 1999

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

26/10/1999

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
 Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
 NL - 2280 HV Rijswijk
 Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
 Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Vlassis, M

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	CHOPEY N P, ONDREY G, PARKINSON G: "Microreactors find new niches" CHEMICAL ENGINEERING, März 1997 (1997-03), Seiten 30-33, XP000197691 Seite 33 -----	1,2,9

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 99/01357

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 9630934 A	03-10-1996	SE 510760 C	21-06-1999
		EP 0870320 A	14-10-1998
		JP 11503227 T	23-03-1999
		SE 9501116 A	30-09-1996
EP 0281364 A	07-09-1988	JP 63232855 A	28-09-1988
DE 3915920 A	22-11-1990	KEINE	